

10/534155
PCT/JP03/14219 #2

PCT/PTO 05 MAY 2005

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

28.11.03

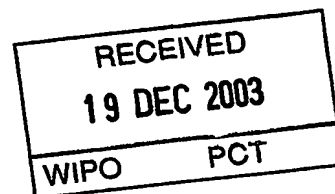
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて、
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2002年11月11日

出 願 番 号
Application Number: 特願2002-326724
[ST. 10/C]: [JP2002-326724]

出 願 人
Applicant(s): 日本ケミコン株式会社
三菱化学株式会社

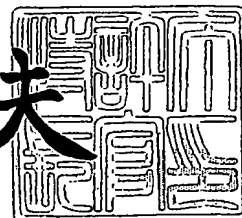


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年11月21日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-3096556

【書類名】 特許願

【整理番号】 2002111105

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都青梅市東青梅 1 丁目 1 6 7 番地の 1 日本ケミコン株式会社内

 【氏名】 小澤 正

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県稲敷郡阿見町中央八丁目 3 番 1 号三菱化学株式会社内

 【氏名】 武田 政幸

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県稲敷郡阿見町中央八丁目 3 番 1 号三菱化学株式会社内

 【氏名】 宇恵 誠

【特許出願人】

 【識別番号】 000228578

 【氏名又は名称】 日本ケミコン株式会社

 【代表者】 常盤 彦吉

【特許出願人】

 【識別番号】 000005968

 【氏名又は名称】 三菱化学株式会社

 【代表者】 富澤 龍一

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 000136

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電解コンデンサ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽極電極箔と陰極電極箔とセパレータを巻回し、かつ電解液を含浸させてなるコンデンサ素子を外装ケースに収納してなる電解コンデンサにおいて、前記電解液として四弗化アルミニウム塩を含有する電解液を用い、かつコンデンサ素子に含有される水分量を 0.7 wt % 以下とした電解コンデンサ。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【産業上の利用分野】

この発明は電解コンデンサ、特に低インピーダンス特性、および高耐電圧特性を有する電解コンデンサに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

電解コンデンサは、一般的には帯状の高純度のアルミニウム箔に、化学的あるいは電気化学的にエッチング処理を施して、アルミニウム箔表面を拡大させるとともに、このアルミニウム箔をホウ酸アンモニウム水溶液等の化成液中にて化成処理して表面に酸化皮膜層を形成させた陽極電極箔と、エッチング処理のみを施した高純度のアルミニウム箔からなる陰極電極箔とを、マニラ紙等からなるセパレータを介して巻回してコンデンサ素子を形成する。そして、このコンデンサ素子は、電解コンデンサ駆動用の電解液を含浸した後、アルミニウム等からなる有底筒状の外装ケースに収納する。外装ケースの開口部には弾性ゴムからなる封口体を装着し、絞り加工により外装ケースを密封している。

【0 0 0 3】

ここで、コンデンサ素子に含浸される高電導率を有する電解コンデンサ駆動用の電解液として、 γ -ブチロラク톤を主溶媒とし、溶質として環状アミジン化合物を四級化したカチオンであるイミダゾリニウムカチオンやイミダゾリウムカチオンを、カチオン成分とし、酸の共役塩基をアニオン成分とした塩を溶解させたものが用いられている。（特許文献 1 及び特許文献 2 参照）。

【0004】

【特許文献1】

特開平08-321440号公報

【特許文献2】

特開平08-321441号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、近年、電子情報機器はデジタル化され、さらにこれらの電子情報機器の心臓部であるマイクロプロセッサの駆動周波数の高速化がすすんでいる。これに伴って、周辺回路の電子部品の消費電力の増大化が進み、それに伴うリップル電流の増大化が著しく、この回路に用いる電解コンデンサには、低インピーダンス特性が要求される。

【0006】

また、特に車載の分野では、自動車性能の高機能化に伴って、前述の低インピーダンス特性に対する要求が高い。ところで、車載用回路の駆動電圧は14Vであるが、消費電力の増大にともなって42Vへと進展しつつあり、このような駆動電圧に対応するには電解コンデンサの耐電圧特性は28V、84V以上が必要である。さらに、この分野では高温使用の要求があり、電解コンデンサには高温寿命特性が要求される。

【0007】

ところが、前記の電解コンデンサでは、このような低インピーダンス特性に対応することができず、また、耐電圧も30Vが限界で、28Vには対応できるものも、84V以上というような高耐電圧の要求には答えることができなかった。

【0008】

そこで、本発明は、低インピーダンス特性を有し、さらに100V級の高耐電圧特性を有し、高温寿命特性も良好な電解コンデンサを提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決しようとする手段】

本発明の電解コンデンサは、陽極電極箔と陰極電極箔とセパレータを巻回し、かつ電解液を含浸させてなるコンデンサ素子を外装ケースに収納してなる電解コンデンサにおいて、前記電解液として四弗化アルミニウム塩を含有する電解液を用い、かつコンデンサ素子に含有される水分量を 0.7 wt % 以下、好ましくは 0.5 wt % 以下、さらに好ましくは 0.4 wt % 以下としたことを特徴としている。

【0010】

【発明の実施の形態】

本発明に用いる電解コンデンサ用電解液は、四弗化アルミニウム塩を含有している。

【0011】

四弗化アルミニウム塩は四弗化アルミニウムをアニオン成分とする塩であるが、この塩としてはアンモニウム塩、アミン塩、4級アンモニウム塩、または四級化環状アミジニウムイオンをカチオン成分とする塩を用いることができる。アミン塩を構成するアミンとしては、一級アミン（メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン、エチレンジアミン、モノエタノールアミン等）、二級アミン（ジメチルアミン、ジエチルアミン、ジプロピルアミン、エチルメチルアミン、ジフェニルアミン、ジエタノールアミン等）、三級アミン（トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、1,8-ジアザビシクロ（5,4,0）-ウンデセン-7、トリエタノールアミン等）があげられる。また、第4級アンモニウム塩を構成する第4級アンモニウムとしてはテトラアルキルアンモニウム（テトラメチルアンモニウム、テトラエチルアンモニウム、テトラプロピルアンモニウム、テトラブチルアンモニウム、メチルトリエチルアンモニウム、ジメチルジエチルアンモニウム等）、ピリジウム（1-メチルピリジウム、1-エチルピリジウム、1,3-ジエチルピリジウム等）が挙げられる。

【0012】

さらに、四級化環状アミジニウムイオンをカチオン成分とする塩においては、カチオン成分となる四級化環状アミジニウムイオンは、N, N, N'-置換アミジン基をもつ環状化合物を四級化したカチオンであり、N, N, N'-置換アミ

ジン基をもつ環状化合物としては、以下の化合物が挙げられる。イミダゾール単環化合物（1-メチルイミダゾール、1-フェニルイミダゾール、1, 2-ジメチルイミダゾール、1-エチル-2-メチルイミダゾール、2-エチル-1-メチルイミダゾール、1, 2-ジエチルイミダゾール、1, 2, 4-トリメチルイミダゾール等のイミダゾール同族体、1-メチル-2-オキシメチルイミダゾール、1-メチル-2-オキシエチルイミダゾール等のオキシアルキル誘導体、1-メチル-4（5）-ニトロイミダゾール等のニトロ誘導体、1, 2-ジメチル-5（4）-アミノイミダゾール等のアミノ誘導体等）、ベンゾイミダゾール化合物（1-メチルベンゾイミダゾール、1-メチル-2-ベンジルベンゾイミダゾール、1-メチル-5（6）-ニトロベンゾイミダゾール等）、2-イミダゾリン環を有する化合物（1-メチルイミダゾリン、1, 2-ジメチルイミダゾリン、1, 2, 4-トリメチルイミダゾリン、1-メチル-2-フェニルイミダゾリン、1-エチル-2-メチルイミダゾリン、1, 4-ジメチル-2-エチルイミダゾリン、1-メチル-2-エトキシメチルイミダゾリン等）、テトラヒドロピリミジン環を有する化合物（1-メチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジン、1, 2-ジメチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジン、1, 5-ジアザビシクロ〔4, 3, 0〕ノネン-5等）等である。

【0013】

本発明に用いる電解コンデンサ用電解液の溶媒としては、プロトン性極性溶媒、非プロトン性溶媒、及びこれらの混合物を用いることができる。プロトン性極性溶媒としては、一価アルコール類（エタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロブタノール、シクロペンタノール、シクロヘキサノール、ベンジルアルコール等）、多価アルコール類およびオキシアルコール化合物類（エチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、メトキシプロピレングリコール、ジメトキシプロパノール等）などが挙げられる。また、非プロトン性の極性溶媒としては、アミド系（N-メチルホルムアミド、N, N-ジメチルホルムアミド、N-エチルホルムアミド、N, N-ジエチルホルムアミド、N-メチルアセトアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N-エチルアセトアミド、N, N-ジエチルアセ

トアミド、ヘキサメチルホスホリックアミド等)、ラクトン類(γ -ブチロラクトン、 δ -バレロラクトン、 γ -バレロラクトン等)、スルホラン系(スルホラン、3-メチルスルホラン、2, 4-ジメチルスルホラン等)、環状アミド系(N-メチル-2-ピロリドン等)、カーボネイト類(エチレンカーボネイト、プロピレンカーボネイト、イソブチレンカーボネイト等)、ニトリル系(アセトニトリル等)、スルホキシド系(ジメチルスルホキシド等)、2-イミダゾリジノン系〔1, 3-ジアルキル-2-イミダゾリジノン(1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、1, 3-ジエチル-2-イミダゾリジノン、1, 3-ジ(n-プロピル)-2-イミダゾリジノン等)、1, 3, 4-トリアルキル-2-イミダゾリジノン(1, 3, 4-トリメチル-2-イミダゾリジノン等)〕などが代表として、挙げられる。

【0014】

そして、本発明の電解コンデンサのコンデンサ素子に含有される水分量をコンデンサ素子の全重量に対して、0.7wt%以下としている。ここで、コンデンサ素子とはコンデンサ素子のリード線のコンデンサ素子から引き出された部分を切断した部分をいう。このような水分量とするには以下のような方法を用いることができる。すなわち、電解コンデンサの製造工程においては、コンデンサ素子に電解液を含浸した後、外装ケースに封入するまでに吸湿してコンデンサ素子内の水分量が増大する。したがって、この工程を乾燥雰囲気中で行うか、封入前でコンデンサ素子内の水分を除去することによって、コンデンサ素子内の水分量を0.7wt%以下とすることができる。例えば、0.1wt%以下の水分含有量の低い電解コンデンサ用電解液を用い、電解液の含浸前にコンデンサ素子を高温乾燥空気中に放置して乾燥し、含浸後、グローブボックス等の乾燥雰囲気中で外装ケースへ封入、封口する方法、電解液を含浸したコンデンサ素子を40～60℃のもとで、減圧乾燥する方法などをとることができる。

【0015】

これらのことは以下の考察から明らかとなった。すなわち、本発明に用いる電解コンデンサ用電解液を用いた電解コンデンサを高耐湿雰囲気中に放置したところ、特性が劣化した。このコンデンサ素子内の水分量は0.7wt%以下であっ

た。また、同様に放置した従来のフタル酸水素 1-エチル-2, 3-ジメチルイミダゾリニウムの水分量は 2 wt % まで上昇した。また、水分を含有させた電解液を高温放置したところ電解液自体の特性の劣化はなかった。これらのことからコンデンサ素子内に浸透した水分が 0.7 wt % 以上となった時、0.7 wt % を越えた水分が電極箔の酸化皮膜と反応して電解コンデンサの特性の劣化をもたらすことが考えられた。したがって、コンデンサ素子に含有される水分量を 0.7 wt % 以下にすることによって、電解コンデンサの特性の劣化を防止することができる。

【0016】

このように電解液を含浸したコンデンサ素子に水分が吸収されると、コンデンサ素子内で水分の偏在がおこる。すなわち、コンデンサ素子端面に近い部分に水分が多くなり、酸化皮膜との反応性が高くなる。したがって、このような偏在があってもコンデンサの特性に影響しないコンデンサ素子に含有される水分量は 0.7 wt % 以下であると考えられる。

【0017】

以上の本発明の電解コンデンサは、低インピーダンス特性および 100 V 級の高耐電圧特性を有し、高温寿命特性も良好である。すなわち、本発明の電解コンデンサはコンデンサ素子内に含有される水分量を 0.7 wt % 以下としているので、四弗化アルミニウム塩を用い、高温寿命試験を行った場合、コンデンサ素子内に含有される水分によって電解液と電極箔との反応性が大きくなって特性に影響を与えるというようなことがなく、高温寿命特性は安定している。

【0018】

【実施例】

次にこの発明について実施例を示して説明する。コンデンサ素子は陽極電極箔と陰極電極箔をセパレータを介して巻回して形成する。また陽極電極箔、陰極電極箔には陽極引出し用のリード線、陰極引出し用のリード線がそれぞれ接続されている。

【0019】

これらのリード線は、電極箔に当接する接続部とこの接続部と一体に形成した

丸棒部、および丸棒部の先端に固着した外部接続部からなる。また、接続部および丸棒部は99%のアルミニウム、外部接続部は銅メッキ鉄鋼線（以下CP線という）からなる。このリード線の、少なくとも丸棒部の表面には、リン酸アンモニウム水溶液による化成処理により酸化アルミニウムからなる陽極酸化皮膜が形成されている。このリード線は、接続部においてそれぞれステッチや超音波溶接等の手段により両極電極箔に電氣的に接続されている。

【0020】

陽極電極箔は、純度99.9%のアルミニウム箔を酸性溶液中で化学的あるいは電気化学的にエッチングして拡面処理した後、アジピン酸アンモニウムの水溶液中で化成処理を行い、その表面に陽極酸化皮膜層を形成したものをを用いる。

【0021】

そして、電解液を含浸したコンデンサ素子を、有底筒状のアルミニウムよりなる外装ケースに収納し、外装ケースの開口部に封口体を装着するとともに、外装ケースの端部に絞り加工を施して外装ケースを密封する。封口体は、リード線をそれぞれ導出する貫通孔を備えている。

【0022】

ここで、本発明においては電解液含浸前にコンデンサ素子を乾燥し、その後の工程を湿度管理したグローブボックス内で行い、外装ケース収納、密封、エージング後分解して素子水分量を測定した。

【0023】

ここで用いた電解コンデンサ用電解液は、 γ -ブチロラクトン80wt%、四弗化アルミン酸1-エチル-2,3-ジメチルイミダゾリニウム20wt%である。

【0024】

以上のように構成した電解コンデンサの定格は、100WV-22 μ Fであり、これらの電解コンデンサの特性を評価した。試験条件は105℃、1000時間負荷である。その結果を（表1）に示す。

【0025】

【表 1】

	素子水分量 (w t %)	初期特性		105℃ - 1000時間	
		C a p (μ F)	t a n δ	Δ C a p (%)	t a n δ
実施例 1	0 . 2	22.9	0.011	-0.6	0.014
実施例 2	0 . 4	22.9	0.011	-0.7	0.014
実施例 3	0 . 7	22.9	0.011	-0.8	0.016
比較例	0 . 9	22.9	0.011	-2.8	0.019

C a p : 静電容量、t a n δ : 誘電損失の正接、 Δ C a p : 静電容量変化率

【0 0 2 6】

(表 1) から明らかなように、実施例において、低インピーダンス特性を有する 1 0 0 W V の電解コンデンサを実現しており、高温寿命特性は素子水分量が 0 . 9 w t % の比較例に比べて 0 . 7 w t % の実施例 3 は良好であり、0 . 4 w t %、0 . 2 w t % の実施例 2、1 はさらに良好である。

【0 0 2 7】

【発明の効果】

この発明によれば、四弗化アルミニウム塩を含有する電解コンデンサ用電解液を用い、コンデンサ素子に含有される水分量を 0 . 7 w t % 以下としているので、低インピーダンス特性、高耐電圧特性を有し、高温寿命特性も良好な電解コンデンサを提供することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低インピーダンス特性を有し、さらに 1 0 0 V 級の高耐電圧特性を有し、高温寿命特性も良好な電解コンデンサを提供する。

【解決手段】 四弗化アルミニウム塩を含有する電解コンデンサ用電解液を用い、コンデンサ素子に含有される水分量をコンデンサ素子重量の 0 . 7 w t % 以下、好ましくは 0 . 5 w t % 以下、さらに好ましくは 0 . 4 w t % 以下としているので、低インピーダンス特性、高耐電圧特性を有し、高温寿命特性も良好な電解コンデンサを提供することができる。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 3 2 6 7 2 4
受付番号	5 0 2 0 1 6 9 8 6 8 4
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0 0 9 3
作成日	平成 1 4 年 1 2 月 1 0 日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年11月11日
【特許出願人】	申請人
【識別番号】	000228578
【住所又は居所】	東京都青梅市東青梅 1 丁目 1 6 7 番地の 1
【氏名又は名称】	日本ケミコン株式会社
【特許出願人】	
【識別番号】	000005968
【住所又は居所】	東京都千代田区丸の内二丁目 5 番 2 号
【氏名又は名称】	三菱化学株式会社

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 2 6 7 2 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 2 2 8 5 7 8]

1 . 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 3 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都青梅市東青梅 1 丁目 1 6 7 番地の 1

氏 名

日本ケミコン株式会社

特願 2002-326724

出願人履歴情報

識別番号

[000005968]

1. 変更年月日

1994年10月20日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

氏 名

三菱化学株式会社

2. 変更年月日

2003年10月10日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区芝五丁目33番8号

氏 名

三菱化学株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.